蛍光ガラス線量計を用いた積算線量測定（２）
―熱ルミネセンス線量計との比較―

山﨑 興樹・江端 英和・大高 敏裕・笠原 貢*
眞保 隆博・藤巻 広司・加藤 健二・殿内 重政

Cumulative Dose Measurements using Radiophotoluminescence Glass Dosimeter (2)
- Comparison with Thermoluminescence Dosimeter-

Koki Yamazaki, Hidekazu Ebata, Toshihiro Ohtaka, Mitsugu Kasahara,
Takahiro Shinbo, Hiroshi Fujimaki, Kenji Kato and Shigemasa Tonouchi

Since October 1983, the Niigata Prefectural Government has carried out the measurements of cumulative dose using themoluminescence dosimeters（TLDs） around the Kashiwazaki Kariwa nuclear power station. In recent years, it is well known that radiophotoluminescence glass dosimeter（RPLD） has good characteristics as repeated readout capabilities, excellent batch uniformity in sensitivity and long-term stability for fading. In order to introduce RPLD to routine environmental monitoring in the future, cumulative dose was measured using RPLD simultaneously with TLD from the first quarter of 1999 to the 4th quarter of 2000 at the same monitoring points.

There was the almost good correlation between the meaeurement results from RPLD and those from TLD. However, the results from RPLD showed about５% lower values in comparison with those from TLD in the 4th quarter（January to March） in winter season, when mean temperature became down to４℃ or less. On the other hand, in the other quarters, when mean temperature became up to 13 - 26℃, the results from RPLD and TLD coincided practically within ±５% after correcting each fading effect.

To elucidate these phenomena of sensitivity decrease, the gamma-ray irradiation experiments were carried out under the different room temperatures and exposure times. The lowering results of ３-４% from RPLD were detected at less than 6.3℃, in comparison with negligible contributions at beyond８℃.

As a result of this research, RPLD seems to have the sufficient availability as a dosimeter for environmental monitoring. Nevertheless, it is necessary to mind in the sensitivity change of RPLD lowering at about ５%, when it is used in the cold area in the winter.

Keywords：Cumulative dose；Radiophotoluminescence glass dosimeter（RPLD）；
Themoluminescence dosimeter（TLD）；Desensitization；Fading.

１ はじめに

新潟県では東京電力株式会社柏崎刈羽原子力発電所周辺環境放射線監視調査の一環として，昭和58年10月から熱ルミネセンス線量計（以下「TLD」という.）を用いて積算線量の測定を行っている．TLDは全国に多くの使用実績があるため，測定結果の比較評価が容易なことなど利点も多いが，フェーディングにより夏期に値が低下する場合があること，１回の読み取りで線量情報が消えてしまうこと，素子が破損し易く大量素子の自動読み取りができないことなどの欠点を持っている．

近年，これらの点で優れた積算線量計として蛍光ガラス線量計（以下「RPLD」という.）が注目されるようになり，平成12年８月には環境放射線モニタリングに関する指針にも取り入れられた[1)]．

このような状況を考慮して，当所では，TLDに代わる環境モニタリング用積算線量計としてのRPLDの適用性を評価することを目的に，平成９年度から４年計画で「環境中の積算線量の比較調査」を実施した．調査結果のうち，素子の特性試験結果の一部は既に報告した[2)]．ここでは，

*新発田保健所

環境におけるTLDとの比較測定結果を中心に報告する．

2　方　　法

2．1　測定装置

RPLD測定装置は，旭テクノグラス株式会社（旧東芝硝子株式会社）製素子（SC-１）及びリーダー（FGD-202）を，TLD測定装置は松下電器産業株式会社製素子（UD-200S）及びリーダー（UD-512P）を使用した．RPLDリーダーの読み取り時のレーザーパルス数は20パルス，同一線量計に対する繰り返し読み取り回数は10回とした．その他のリーダーのパラメータ設定及び読み取り手順等は，原則としてRPLDについては装置の取扱説明書[3, 4]に，TLDについては科技庁マニュアル[5]に従った．素子はそれぞれ同一ロットのものを用いた．なお，両装置は，年間を通じて温度22～23℃，湿度55%前後の恒温恒湿の部屋に設置した．測定手順をFig.１に示す．

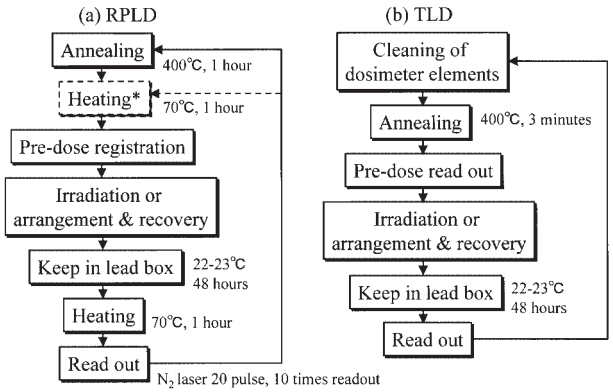

Fig.１．Operational sequence in cumulative dose measurement using (a) RPLD and (b) TLD.
＊It is not necessary to apply heat when the elapsed time after annealing is less than 5 days.

2．2　照射方法

線源による照射は，当所のTLD照射装置（Cs-137, 2.22GBq），エネルギー校正用線源（Cs-137，約37kBq）及びサーベイメータ付属のチェッキングソース（Ra-226, BG＋2300cpm）を用いて行った．

素子感度の照射時温度に対する依存性を調べるため，温度を変えた照射を行った．エネルギー校正用線源及びチェッキングソースを中心に置いて半径約６ｃｍの円周上にRPLD及びTLDを交互に８個ずつ並べ，全体を鉛箱に入れて照射量が環境での３ヶ月積算線量に近い値となるまで恒温環境に放置した．

2．3　調査地点及び調査方法

RPLDとTLDの環境での比較調査は，四半期積算線量を対象として平成11，12年度の２年間実施した．原子力発電所周辺に設置した24地点のTLDポスト（塩化ビニール製）及び当所の恒温恒湿鉛箱内にRPLD３素子及びTLD6素子を互いにできるだけ離して配置し，３ヶ月後に回収した．リーダーでの読み取りは両者とも回収２日後に行い，各地点の測定値は配置素子の平均値を91日間換算した値とした．TLDは，測定の都度TLDを照射装置で照射した標準素子の値でリーダーの校正を行い，さらに素子毎の相対感度補正を行った後，ASTM法[5]による異常値の棄却検定を行った．RPLDは素子自身の感度ばらつきがTLDの半分程度と少なく，リーダーも年１回内部キャリブレーションガラスの値付けを行うことで十分精度を保つことができるため，これらの補正は行わなかった．

また，TLDポスト２地点及び当所恒温恒湿鉛箱内にはフェーディング調査用として，RPLD３素子及びTLD６素子に一定線量（約180μGy）を照射したものを追加配置した．

この他，解析には７地点に併設された自動観測局において10分間隔で連続測定している線量率及び気象データも用いた．

3　結果及び考察

3．1　RPLDの測定条件

RPLDは蛍光中心のビルドアップ条件を一定とするため，読み取り前に70℃１時間の熱処理を行う（Fig.１）が，熱処理後の読み取りは素子温度が室温まで冷却されてから行う必要がある[3, 4]．熱処理後，同一素子の繰り返し読み取りを行い，経過時間に対する読み取り値の変化をプロットした（Fig.２）．図から，正しい読み取り値を得るためには，30分以上の時間経過を要することがわかる．本調査では，熱処理後約40分経過してから読み取りを行った．

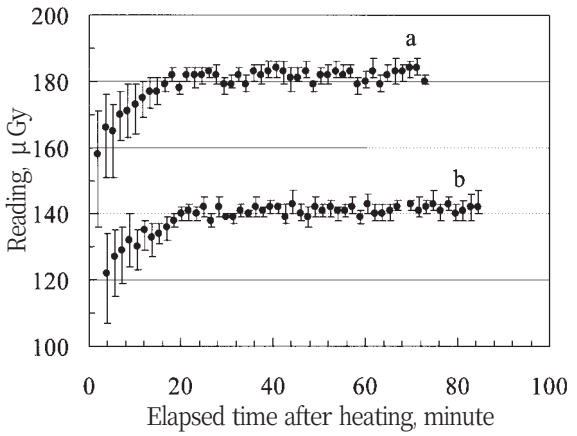

Fig.２．Changes in successive readout of RPLD plotted against elapsed time after heating. Plot (a) is the case of about 180μGy irradiation and (b) is about 140μGy irradiation. The number of elements irradiated simultaneously is 9 in case (a) and 10 in case (b). The average values of 10 times of readouts per element are plotted with respective minimum and maximum values.

RPLDは読み取りによって蛍光中心が消滅しないため，線量を蓄積させながら継続使用できる．しかし，読み取り前の蓄積線量が多いと測定精度が低下するとされている[4]．調査地域の３ヶ月積算線量レベルの線量（約140μGy）を同一ロットから抽出した60素子に対して繰り返し照射し，照射前の蓄積線量（登録値）と同一線量計の10回の繰り返し読み取りの変動係数の関係をプロットした（Fig.3）．蓄積線量の増加とともに変動係数が指数関数的に増加し，測定精度が低下していくことがわかる．図から，環境レベルの低線量測定では，連続使用２回以内で再生処理することが適当と考えられる．本調査では１回の使用毎に素子の再生処理を行なって蓄積線量を消去した．

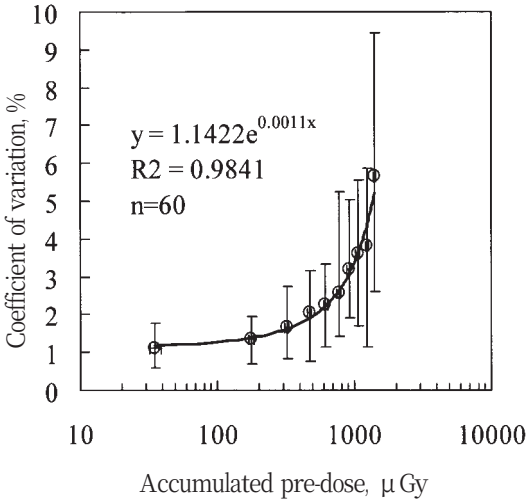

Fig.3．Changes in the coefficient of variation（c.v.）from each 10 times of readouts of RPLD with repeated use for Cs-137 gamma rays of about 140μGy irradiation against accumulated pre-dose. The average values of c.v. of 60 elements are plotted with respective minimum and maximum values.

３．２　環境での比較測定

１）　季節変動と外気温の影響

RPLDとTLDによる四半期積算線量を地点毎に比較した結果，両者の間には良い相関が認められたが，第２四半期（７～９月，夏期）はRPLDが全地点でTLDを上回り，第４四半期（１～３月，冬期）は逆に全地点でTLDを下回った（Fig.4）．次に，季節変動を調べるため，RPLD，TLD及びRPLD/TLD比の全地点平均値と四半期平均気温（外気温度を連続測定している２地点の全データの平均値）を時系列変化図に示した（Fig.5）．図からRPLD/TLD比には平均気温とパラレルな周期的変動が認められ，RPLDの値はTLDに比べて気温の高い第２四半期に大きく，気温の低い第４四半期に小さくなっていることがわかる．

７地点の自動観測局に設置されているNaI(Tl)シンチレーション検出器（以下「NaI」という．）及びアルゴン加圧型電離箱検出器（以下「IC」という．）のうち，ICは外気温の変化に対して安定であり，NaIは電子回路による温度補償対策が講じられている．さらに，両検出器とも断熱カバーで覆った上，雪が付着しないよう年間を通じて35℃に恒温制御している．従って，これらの検出器による測定値は外気温の影響をほとんど受けていないと考えて良い．

そこで，NaI，ICの測定値から積算線量を求め，RPLD，TLDの値との比較を行った．Fig.6（a）にそれぞれの四半期積算線量の７局平均値を，Fig.6（b）に最も外気温の変動に対して安定なICの値を基準にとった相対値を示す．TLD，RPLDともIC及びNaIとは

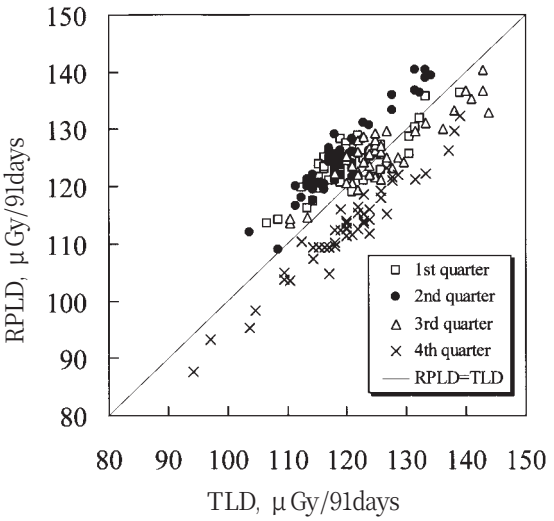

Fig.4．Correlation between the measurement results of RPLD and those of TLD observed at 24 monitoring points. These data were compiled from lst quarter of 1999 to 4th quarter of 2000.

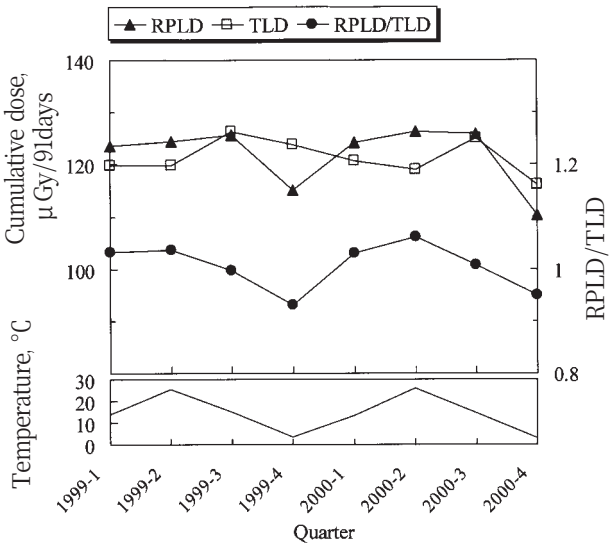

Fig.5．Seasonal variations in the average values of RPLD, TLD, RPLD/TLD ratio at 24 monitoring points and ambient temperatures at 2 monitoring stations.

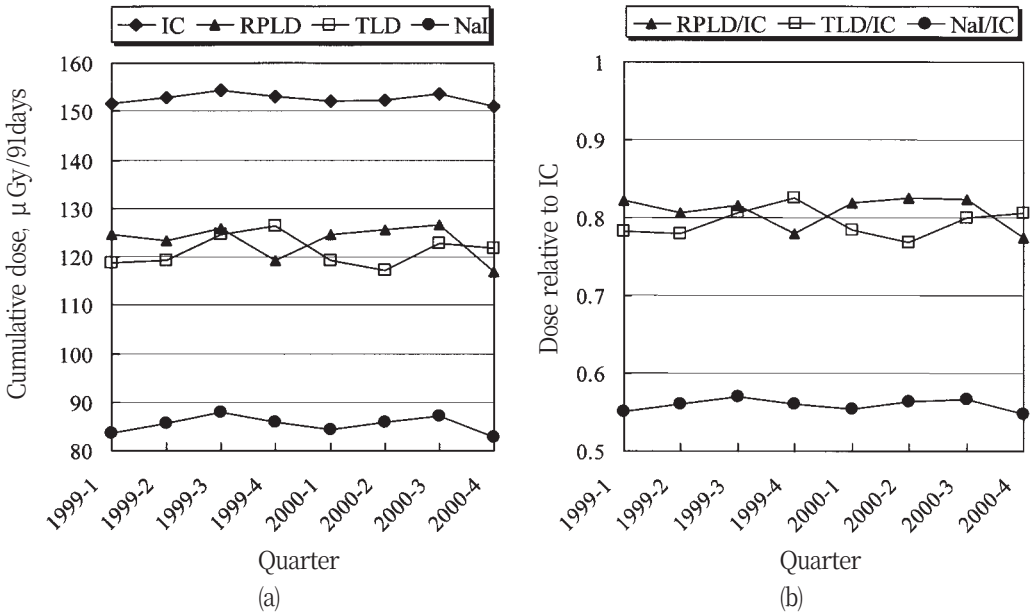

Fig.6．Seasonal variations in(a)the average values of cumulative dose using IC, RPLD, TLD, NaI at 7 monitoring stations and(b)the dose relative to IC.

異なるパターンの季節変動が現われている．第２四半期を中心としたTLDの低値傾向及び第４四半期のRPLDの低値傾向は，それぞれ異なる原因による素子の外気温度依存性の結果と考えられ，前者は夏期の高温時のフェーディングによる低下，後者は冬期の低温時に何らかのメカニズムで感度低下が起こるためと推定される．

２）　フェーディング

フェーディング調査用素子の測定結果から，フェーディング補正係数を温度の関数として求めた．科技庁マニュアル[5]に従い，RPLD，TLDとも期間内一定被ばくの仮定の下でフェーディングを指数関数モデルで表わして計算した．調査を行った３地点の結果をまとめてFig.7に示す．

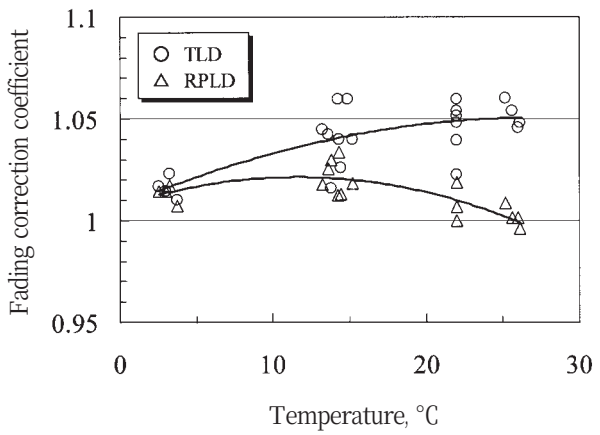

Fig.7．Temperature dependence of fading effects observed at two monitoring stations and in the lead box kept at a constant temperature. The curves are calculated by the least square method.

ばらつきが大きいが，TLDは高温時にフェーディングが大きく最大約６％，RPLDは年間を通じて小さく最大でも約３％となった．図の曲線は，それぞれの補正係数を最小二乗法により二次関数フィッティングさせたものである．

３）　RPLDの冬期の感度低下

RPLD/TLD比の全地点平均値を四半期平均気温に対してプロットした（Fig.８）．Fig.８(a)はフェーディングの影響も含めた値であり，Fig.８(b)はFig.７の補正曲線から求めたフェーディング補正係数を乗じてフェーディングの影響を除いた値である．なお，外気温度の地点差は無視した．

Fig.８(b)から，TLDとRPLDによる積算線量は，平均気温13～26℃となる第１～第３四半期では概ね±５％以内で一致したが，平均気温が４℃以下となる第４四半期では，RPLDが全地点平均値で５％以上TLDを下回る結果となった．

３．３　照射実験

環境での調査によってRPLDの冬期の感度低下が明らかとなったことから，感度の温度依存性を詳細に検討するため温度を変えた照射実験を行った．

１）　TLD照射装置による短時間照射

TLD照射装置を用いて環境調査素子の回収時及び冬期の低温時に照射を行なった．１照射あたり５素子を使用し，照射時間は１時間，線量は約180μGyである．素子感度，すなわち読み取り値を照射した空気吸収線量で除した値，を照射時の室温に対してプロットした（Fig.９）．TLD照射室は室温の制御がで

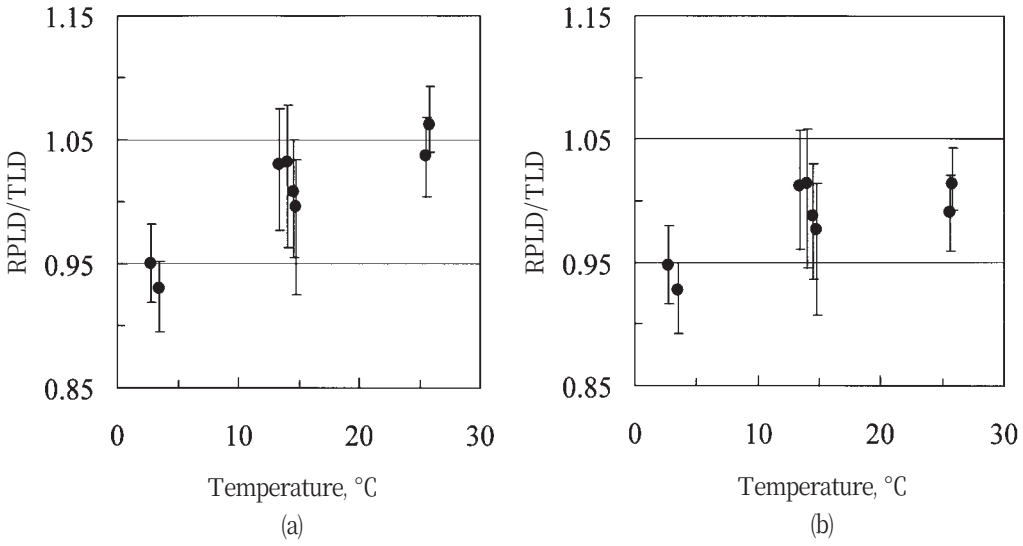

Fig.8. Temperature dependence of RPLD/TLD ratios (a) including gradual loss by fading effects and (b) after correcting each fading effect using the curves of Fig.7.

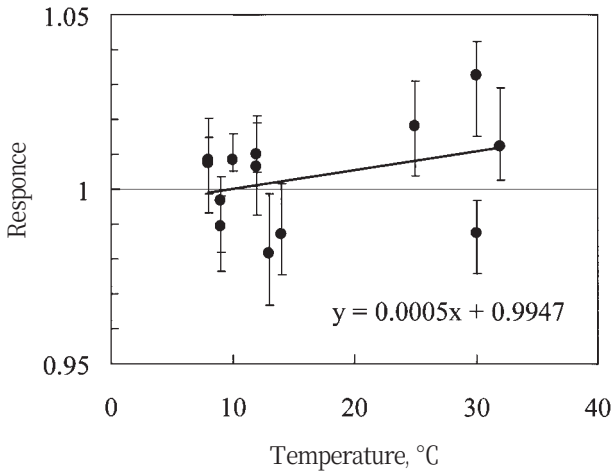

Fig.9 Temperature dependence of RPLD response. One hour irradiation by Cs-137 was carried out at different room temperatures. The average values of 5 elements are plotted with respective minimum and maximum values. The straight line is calculated by the least square method.

きないため，外気温を反映した８℃～32℃の温度範囲で照射を行った．この範囲ではわずかに正の温度依存性が認められるが，変化は0.05%/℃と少なかった．

２） 弱い線源による長時間照射

検出器校正用線源を用い，恒温室に設置した鉛箱中で約100時間照射した．線量はCs-137が約95μGy，Ra-226が約150μGyである．照射結果をFig.10に示す．平均室温-14.5，2.0，14.5，22.5℃の４通りの温度で照射し，結果を14.5℃の場合を基準とした相対感度で示した．RPLDは低温で感度が低下し，2.0℃と14.5℃では約３%の感度差を生じた．2.0℃と-14.5℃及び14.5℃と22.5℃の間ではほとんど差が見られなかった．TLDは温度が高くなるに従いフェーディングによる感度低下が見られた．

３） 冬期の加温による効果

実環境に近い条件で温度影響を確認するため，平成13年２月10日から３月14日の冬期の32日間，同じ大きさの２個のマントルヒータに二組の素子を入れて空調のない室内に設置し，片方を通電して加温した．素子一組はRPLD３素子及びTLD４素子とし，加温温度は平均22.5℃に調整した．設置期間中の室温は平均6.3℃，32日間の自然被ばくによる積算線量は約70μGyであった．

測定結果をFig.11に示す．室温での値を基準とした相対感度は，加温によりRPLDが約４%増加，TLDが約７%減少した．すなわち，第４四半期の温度環境に近い平均6.3℃では，第１～第３四半期の中間的な温度環境である平均22.5℃の場合に比べてRPLDの感度は約４%低下することとなり，屋外環境での調査結果に近い低下量となった．

３．４ 他の調査事例との比較

RPLDとTLDの比の季節による周期的変動は，石渡ら[6]による静岡県浜岡町での調査，田島ら[7]による鹿児島県川内市での調査及び西田[8]による柏崎刈羽地域での調査報告にも示されている．

TLDが相対的に低値となる第２四半期の現象については，いずれの報告も本調査同様RPLDのフェーディングがTLDより少ないことが原因と推定しており，西田はRPLD/TLD比と素子回収前４週間の平均外気温度との間に正の相関があることを報告している．

しかしRPLDが相対的に低値となる第４四半期の現象に

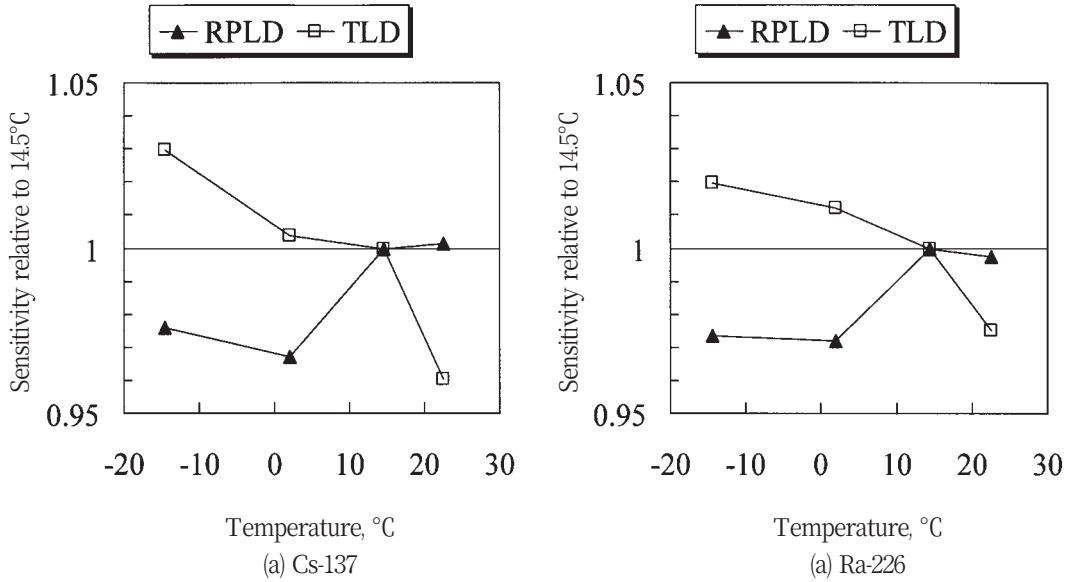

Fig.10. Changes in the sensitivity of RPLD and TLD as a function of irradiation temperature. The sensitivity was shown as relative value normalized to 14.5℃. About 100 hours of irradiation by (a) Cs-137 and (b) Ra-226 was carried out at each temperature. The average values of 8 elements are plotted.

ついては，石渡ら及び田島らの調査では現象自体が認められておらず，田島らはRPLDによる積算線量には周期的な季節変動はみられないので外気温の影響は受けないものと考えられるとしている．一方，原因は調査中としているが，本調査と同じ柏崎刈羽地域で実施した西田の報告には，Fig.５に示したと同様なRPLD/TLD比の低下現象が現われている．

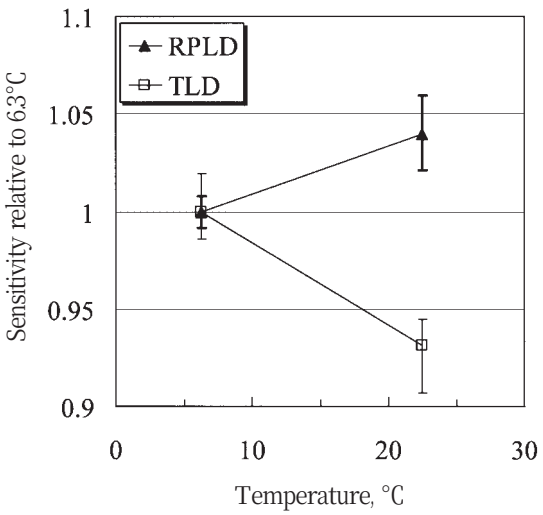

Fig.11. The effects of ambient temperature on the readings of RPLD and TLD under environmental radiation. Two batches of each element were arranged at a cold room during 32 days in winter period. One batch was irradiated at 6.3℃average room temperature, and the other was irradiated at 22.5℃ on average.

この違いは，第４四半期の平均気温の差にあると考えられる．理科年表[9]によれば，新潟，静岡，鹿児島の1998年１月～３月の平均気温はそれぞれ，4.2，8.6，11.3℃である．本調査結果から，８℃以上ではほとんど感度に変化がみられず（Fig.９），6.3℃以下で３～５％程度の顕著な感度低下がみられている（Fig.８，10，11）ことから，RPLDは6.3℃と８℃の間で感度が大きく変化する温度特性を有すると考えられる．この“しきい温度”を境に柏崎刈羽地域では認められた第４四半期の感度低下現象が静岡，鹿児島では現われなかったものと考えられる．

３．５　RPLDの感度低下のメカニズム

RPLDは，銀イオンを付活剤として添加したある種のリン酸塩ガラスに放射線を照射し，のちに紫外線で刺激すると蛍光を発する現象（radiophotoluminescence：RPL）を利用した線量計である．このガラスのRPLは，放射線照射後，光刺激すなわち測定までの時間経過とともに強度が増大し，後に一定強度に達するという特性があり，この増加速度は低温で遅く高温で速い[10]．

放射線照射によって作られた電子-正孔対のうち，電子はAg^{+}イオンに捕獲されてAg^{0}が生成するが，正孔はいったんPO_4分子に捕らえられた後時間の経過に伴いAg^{+}に移行し，安定なAg^{++}を形成する（Fig.12）．Ag^{0}及びAg^{++}が蛍光中心であることは横田[11]によって電子スピン共鳴（ESR）の手法を用いて確かめられている．Ag^{++}が形成されるビルドアップ過程の進行速度は低温ほど緩慢である[4, 10, 12]．

RPLDを用いた積算線量測定の一連の操作の中で，周囲温度の影響を考慮する必要があるのは，照射（配置による

$$Ag^{+} + e = Ag^{0} \quad \text{(electron trapping)}$$
$$Ag^{+} + hPO_4 = Ag^{++} \quad \text{(hole trapping)}$$

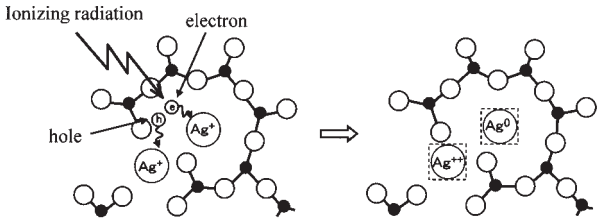

Fig.12. The mechanism for the formation of radiophoto luminescence center in a silver activated metapho sphate glass structure.

環境放射線の被ばくも含む）時，読み取りまでの保管時及び読み取り時である．

このうち，読み取り時の温度との関係では，内部キャリブレーションガラスと測定素子との温度差がある場合，Pieschら[13]は読み取り値に-0.56%/℃の変化をもたらすと報告しているが，当所ではリーダーと素子保管用鉛箱を恒温恒湿の同じ部屋に設置しているため，この影響は無視できる．

次に照射から読み取りまでの保管温度については，前述したように低温ほど蛍光中心のビルドアップの進行速度は遅く，測定値は過小評価となる．しかし，本調査ではTLDの測定手順にあわせ，48時間恒温恒湿鉛箱に保管後，ビルドアップを完成させるため70℃１時間の熱処理を行ってから測定している．従って，保管時のビルドアップ条件は測定毎に一定であり，保管温度の影響についても無視できる．

照射時の温度依存性については，放射線計測協会が行った－30～＋40℃の範囲での温度に対する安定性試験結果によれば，熱処理をしない場合は蛍光量に約0.3%/℃の変化が見られたが，熱処理後は約0.1%/℃に小さくできる[12]と報告されており，Pieschらも＜0.1%/℃と報告している[13]．しかし本調査では，Fig.10，11から熱処理を行っても0.2～0.3%/℃の変化が認められており，また変化のパターンも“しきい温度”の存在を思わせる階段状に近い変化を示し，これらの報告とは異なっている．この理由については今後の検討課題である．

また，照射実験で得られた低温での感度低下は３～４％であり，屋外環境における第４四半期の感度低下が５％以上あるのに比べやや少なくなっている．この差については測定誤差も考えられるが，室内実験で再現できない要因による可能性も考えられる．すなわち，第４四半期は積雪による遮蔽効果で大地からのγ線が減少する期間が長くなるが，これらのγ線のうち，ウラン系列核種からの寄与は降雪とともに地表に降下する増加分と相殺し，期間全体では大きな増減はないと考えられるのに対し，その他の核種，特にK-40からのγ線寄与は無雪期に比べて減少する[14]．このため，第４四半期は他の四半期とは環境γ線のエネルギー分布が異なったものとなり，TLDとRPLDのエネルギーレスポンスに差があれば両者の積算線量にも差が現われることになる．この点についても今後検討していきたい．

４ ま と め

環境モニタリング用積算線量計としてのRPLDの適用性を評価するため，四半期積算線量を対象として，平成11，12年度の２年間TLDとの比較測定を行なった．

(1) 両者の測定結果の間には良い相関が認められたが，第２四半期（夏期）はRPLDの値が全地点でTLDを上回り，第４四半期（冬期）は逆に全地点でTLDを下回った．

(2) RPLD/TLD比の全地点平均値は第２四半期に高く第４四半期に低い結果となり，四半期平均気温とパラレルな季節変動を示した．

(3) 外気温の影響をほとんど受けないIC及びNaIによる積算線量と比較すると，RPLD，TLDともIC及びNaIとは異なる季節変動パターンを示し，それぞれ別の原因による外気温依存性が現われているものと考えられた．

(4) 科技庁マニュアルの方法で求めたフェーディングによる積算線量測定値の減少率は，TLDは平均気温が高くなるとともに増加し最大約６％，RPLDは年間を通じて小さく最大約３％となった．

(5) RPLDとTLDの測定結果は，フェーディングの影響を除くと平均気温が13から26℃となる第１～第３四半期では概ね±５％以内で一致したが，平均気温が４℃以下となる第４四半期では，RPLDが５％以上TLDを下回った．

(6) 平均温度-14.5℃～32℃の範囲で照射実験を行った結果，RPLDの感度は８℃以上ではほとんど変化しなかったが，6.3℃以下で３～４％の顕著な低下を示し，“しきい温度”の存在を思わせる結果となった．

(7) 静岡県，鹿児島県の調査において第４四半期にRPLD/TLD比の低下現象が認められなかった原因は，平均気温が“しきい温度”よりも高かったためと考えられた．

(8) RPLDの低温での感度低下のメカニズム及び感度低下に温度以外の要因が寄与している可能性については今後の検討課題である．

RPLDはTLDに比べて優れている点が多く，環境モニタリング用積算線量計として十分な性能を有していると考えられるが，本調査で初めて認められた現象として，積雪寒冷地の冬期間のモニタリングでは５%程度感度が低下することに留意する必要がある．

謝　　辞

本研究を進めるにあたり，新潟大学理学部教授橋本哲夫先生には多くの示唆に富んだ助言と励ましのお言葉をいただきました．ここに記して深く感謝申し上げます．

文　　献

1）原子力安全委員会：環境放射線モニタリングに関する指針，平成元年３月（平成12年８月一部改訂）．
2）山崎興樹，笠原　貢，殿内重政：新潟県保健環境科学研究所年報，**14**，88（1998）．
3）東芝硝子株式会社：東芝ガラス線量計リーダFGD－202取扱説明書，1996年９月．
4）東芝硝子株式会社：東芝ガラス線量計環境モニタリングシステム技術説明書，平成７年４月．
5）科学技術庁：熱ルミネセンス線量計を用いた環境γ線量測定法，平成２年改訂．
6）石渡達也他：第32回理工学における同位元素研究発表会要旨集，107（1995）．
7）田島義徳他：鹿児島県環境保健センター所報，**1**，103（2000）．
8）西田由博：保健物理，**33**，134（1998）．
9）文部省国立天文台編：理科年表CD-ROM2000，丸善，平成11年11月．
10）藤村亮一郎，山下忠興：放射線による固体現象と線量測定，養賢堂，（1985）．
11）横田良助：応用物理，**38**，1077（1969）．
12）財団法人放射線計測協会：放射線計測機器の規格化に関する対策研究成果報告書（平成５年３月）．
13）Piesch, E., Burgkhardt, B.：Radioprotection, **29**，39（1994）．
14）山崎興樹，谷川義夫：新潟県保健環境科学研究所年報，**12**，124（1996）．